

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2001年3月8日 (08.03.2001)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 01/16398 A1

- (51) 国際特許分類⁷: C25B 9/00, 15/08, 1/34 (72) 発明者; および
(21) 国際出願番号: PCT/JP00/05791 (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 野秋康秀
(22) 国際出願日: 2000年8月28日 (28.08.2000) (NOAKI, Yasuhide) [JP/JP]; 〒882-0863 宮崎県延岡市
(25) 国際出願の言語: 日本語 緑ヶ丘2-4-1-105 Miyazaki (JP). 岡本三郎 (OKAMOTO,
(26) 国際公開の言語: 日本語 Saburo) [JP/JP]; 〒889-0624 宮崎県東臼杵郡門川町
(30) 優先権データ: 城ヶ丘7-7 Miyazaki (JP).
特願平11/242002 1999年8月27日 (27.08.1999) JP
特願平11/242759 1999年8月30日 (30.08.1999) JP
(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 旭化成
工業株式会社 (ASAHI KASEI KOGYO KABUSHIKI
KAISHA) [JP/JP]; 〒530-8205 大阪府大阪市北区堂島
浜1丁目2番6号 Osaka (JP).

(74) 代理人: 吉岡正志 (YOSHIOKA, Masashi); 〒107-0052
東京都港区赤坂1丁目3番5号 赤坂アビタシオンビル
3階 Tokyo (JP).

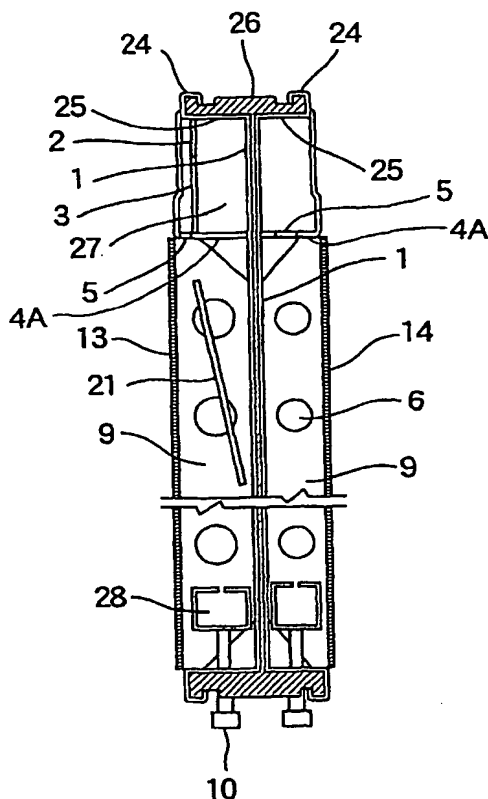
(81) 指定国 (国内): CA, CN, JP, US.

(84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE,
DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).

[続葉有]

(54) Title: UNIT CELL FOR ALKALI CHLORIDE METAL AQUEOUS SOLUTION ELECTROLYTIC TANK

(54) 発明の名称: 塩化アルカリ金属水溶液電解槽用の単位セル



(57) Abstract: Each of a plurality of unit cells for multi-pole filter press type electrolytic tank, including an anode-side pan-like frame having an anode room and an anode-side gas/liquid separation room extending along the entire length of the upper side thereof, and a cathode-side pan-like frame similarly having a cathode room and a cathode-side gas/liquid separation room, characterized in that a porous segment-containing foam removing partition wall extending from the holed bottom wall upward and along the entire length of the anode-side gas/liquid separation room is provided in the gas/liquid separation room, holes in the porous segment are provided so as to be positioned at least 10 mm above the inner surface of the holed bottom wall of the separation room, and the separation room is partitioned by the foam removing partition wall into a first passage having the holed region of the holed bottom wall and a second passage having the non-holed region of the holed bottom wall and communicating with gas and liquid discharge nozzles.

[続葉有]



添付公開書類:
— 国際調査報告書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(57) 要約:

複数の複極式フィルタープレス型電解槽用の単位セルの各々は、陽極室とその上側の全長にわたって延びる陽極側気液分離室とを有する陽極側鍋状枠体及び、同様に陰極室と陰極側気液分離室とを有する陰極側鍋状枠体を包含している単位セルにおいて、少なくとも該陽極側気液分離室に、該有孔底部壁から上方に且つ該気液分離室の全長にわたって延びる多孔性セグメント含有気泡除去用仕切壁を有し、該多孔性セグメントの孔は、該気液分離室の該有孔底部壁の内面から少なくとも10mm上に位置するように設けられており、該気泡除去用仕切壁によって該気液分離室は、該有孔底部壁の有孔域を有する第1通路と、該有孔底部壁の非有孔域を有し且つ気体及び液体の排出ノズルに通じている第2通路とに仕切られていることを特徴とする単位セルが開示されている。

明 細 書

塩化アルカリ金属水溶液電解槽用の単位セル

技術分野

本発明は、複極式フィルタープレス型塩化アルカリ金属水溶液電解槽用の単位セルに関する。更に詳細には、本発明は陽イオン交換膜を介して直列に配列された複数の単位セルを含む複極式フィルタープレス型塩化アルカリ金属水溶液電解槽用の単位セルであり、上記複数の単位セルの各々は、陽極室と、その上側の全長にわたって延びる陽極側気液分離室とを有する陽極側鍋状枠体、及び陰極室と、その上側の全長にわたって延びる陰極側気液分離室とを有する陰極側鍋状枠体を包含し、該陽極側鍋状枠体と該陰極側鍋状枠体は背中合わせに配置されており、該陽極側及び陰極側気液分離室は、該陽極室と該陰極室からそれぞれを仕切る有孔底部壁を有している単位セルにおいて、上記2つの気液分離室のうち少なくとも該陽極側気液分離室は該有孔底部壁から上方に延びる多孔性セグメント含有気泡除去用仕切壁を有し、該気泡除去用仕切壁は該気液分離室の全長にわたって延び、該気液分離室を、該底部壁の有孔域の上に形成された第1通路Aと、該底部壁の非有孔域の上に形成され且つ気体及び液体の排出ノズルに通じている第2通路Bとに仕切っており、該気泡除去用仕切壁の該多孔性セグメントの孔は、該気

液分離室の該底部壁の内面から少なくとも10mm上に位置するように設けられていることを特徴とする単位セルに関する。

本発明の単位セルは、ガスと電解液を実質的に完全に分離した状態で排出することができるため、本発明の単位セルを用いた電解槽は、高電流密度で電解を行う場合においても、電解槽の振動によるイオン交換膜の破損を抑制することができる。

従来技術

一般的に、塩化アルカリの安定した電解を行ない、塩素、水素、苛性ソーダを安価に生産するために要求されることには、設備コストが安価であること、低電圧で電解できること、電解槽内の振動等によりイオン交換膜が破損しないこと、電解槽内の電解液濃度の分布が均一でイオン交換膜の電圧や電流効率が長期間安定していること等があげられる。

このような要求に応じて、近年のイオン交換膜を用いた塩化アルカリ電解技術（イオン交換膜電解法）の向上はめざましいものがある。特にイオン交換膜、電極、電解槽の性能向上は著しく、イオン交換膜法の出現当初は 30 A/dm^2 でのNaOH生産量1tあたりの電力消費は2,600kWであったが、近年では2,000kW以下になろうとしている。しかし、最近は更に設備大型化や省力化、高効率化の要望が強くなっており、電解槽においても電解電流密度も当初の 30 A/dm^2 から、現在では 50 A/dm^2 以上で電解できるようにす

ることが求められている。

しかし、高電流密度の電解においては、ガスの発生量が増加するため、電解槽内の圧力変動による振動が生じやすく、長期的にはイオン交換膜の破損を引き起こす場合があった。

特に塩化アルカリ電解槽の単位セルの陽極側においては、気泡の影響が著しい。例えば 40 A/dm^2 、 0.1 MPa 、 90°C の電解条件では、陽極室上部は気泡が充満しており、ガスの割合が 80 体積%以上にもなる部分が発生する。このようなガスの割合が大きな部分は電流密度が大きくなればなるほど拡大する傾向がある。

このようなガス液比の大きな部分は流動性に欠けるため、セル内の流動攪拌が不十分になり、局部的な電解液の濃度低下を生じたり、ガスの滞留部分が生じる場合があった。ガス液比の大きな部分をできるだけ減少させるためには、電解圧力を大きくすることや、電解液の循環量を大幅に増大するなどの方法はあるが、安全上の問題や設備建設コストが高くなる傾向があり好ましくない。

高電流密度で高純度のアルカリ金属水酸化物を生産するためのイオン交換膜を用いた塩化アルカリ電解槽用の単位セルについては、従来より多数提案されている。例えば日本国特開昭51-43377号公報（米国特許第4,111,779号公報に対応）、日本国特開昭62-96688号公報（米国特許第4,734,180号公報に対応）、日本国公表特許公報昭6

2-500669号公報（米国特許第4,602,984号公報に対応）等がある。しかし、これらの文献に開示された単位セルは、液及びガスを気液混相のまま単位セルの上部から抜き出しているため電解槽内に振動が発生しイオン交換膜を破損するなどの欠点があった。更に単位セル内部で電解液を混合する工夫がなされておらず、そのために電解室内の電解液の濃度分布を均一にするため多量の電解液を循環しなければならない場合があった。

日本国特開昭61-19789号公報及び米国特許第4,295,953号公報は、中空の額縁型セルフフレームを用い、電解液を下向きに流すための通路として機能する導電性分散体を電極板と電極シートとの間に配置してなる単位セルが開示されている。日本国特開昭63-11686号公報では、中空構造を有する額縁型セルフフレームを用い、電解液を下向きに流すための通路として機能する筒状電流分配部材を有する単位セルが開示されている。これらの先行技術においては、単位セル内での電解液の循環は改良されたが、高電流密度で電解を行うと、気体及び液体の排出口付近で振動が発生しやすいだけでなく、電極室の上部にガスが滞留しやすいという問題があった。更に、単位セル内の構造が複雑になってしまうという問題もあった。日本国実開昭59-153376号公報では、電解槽内で生じる振動を防止するための対策として、電極室の上部（電解液の液面付近）にメッシュ構造を有する泡沫成長抑止体を設置する

ことを提案しているが、この方法だけでは未だ十分に気液分離することができず、電解槽内の圧力変動に基づく振動を完全に防止することはできなかった。

日本国特開平4-289184号公報（米国特許第5,225,060号公報に対応）は、それぞれ陽極室及び陰極室の上にある陽極側及び陰極側非通電部に設けられ且つ陽極室及び陰極室の上側の全長にわたって延びる陽極及び陰極気液分離室、及びこれにより分離されたガスと電解液を、分離した状態で排出するための下向きに設けられた排出口を有する単位セルを用いた電解槽が開示されている。更に、上記日本国特開平4-289184号公報において、陽極室及び／又は陰極室にL型の筒状ダクトを設けることにより、電極室内の電解液の循環を促進している。上記のような電解槽を用いると、 45 A/dm^2 以下で電解を行う場合には、振動も比較的少なく、電解液の濃度分布も均一にすることができる。しかし、例えば、 50 A/dm^2 以上の高電流密度で電解を行うと、電解槽内の気泡の量が非常に多くなる。このような場合、上記の電解槽では、気液分離が不十分になることにより振動が大きくなり、イオン交換膜に悪影響を与えるだけでなく、電解液の濃度分布も不均一になるという問題が生じる。

また、日本国特開平8-100286号公報（米国特許第5,571,390号公報に対応）は、上記のような気液分離室を有する単位セルの電極室内に多数の垂直方向に延びるダクト

(ダウンカマー) を設けることを提案している。しかし、この文献に記載の単位セルにおいても、 50 A/dm^2 以上の高電流密度で電解を行う場合、気液分離が不十分になるため振動が大きくなり、イオン交換膜に悪影響を与えるという問題が生じる。

発明の概要

このような条件下、本発明者等は、イオン交換膜法電解槽を用いて、例えば 50 A/dm^2 以上の高電流密度で電解を行う場合においても、ガスと電解液を実質的に完全に分離した状態で排出することにより、単位セル内の振動を防止し、イオン交換膜の破損等が起きない複極式フィルタープレス型電解槽用の単位セルを開発すべく鋭意研究を重ねた。その結果、驚くべきことに、陽極室と、その上側の全長にわたって延びる陽極側気液分離室とを有する陽極側鍋状枠体、及び陰極室と、その上側の全長にわたって延びる陰極側気液分離室とを有する陰極側鍋状枠体を包含し、該陽極側鍋状枠体と該陰極側鍋状枠体は背中合わせに配置されており、該陽極側及び陰極側気液分離室は、該陽極室と該陰極室からそれぞれを仕切る有孔底部壁を有している単位セルにおいて、上記 2 つの気液分離室のうち少なくとも該陽極側気液分離室は該有孔底部壁から上方に延びる多孔性セグメント含有気泡除去用仕切壁を有し、該気泡除去用仕切壁は該気液分離室の全長にわたって延び、該気液分離室を、該底

部壁の有孔域の上に形成された第 1 通路 A と、該底部壁の非有孔域の上に形成され且つ気体及び液体の排出ノズルに通じている第 2 通路 B とに仕切っており、該気泡除去用仕切壁の該多孔性セグメントの孔は、該気液分離室の該底部壁の内面から少なくとも 10 mm 上に位置するように設けられていることを特徴とする単位セルを用いた複極式フィルタプレス型電解槽で塩化アルカリ金属水溶液の電解を行うと、ガスと電解液を実質的に完全に分離した状態で排出することが可能になることを見出した。この新しい知見に基づき、本発明を完成したものである。

従って、本発明の 1 つの主要な目的は、 50 A/dm^2 以上の高電流密度で電解を行う場合においても、ガスと電解液を実質的に完全に分離した状態で排出することにより、単位セル内の振動を防止し、イオン交換膜の破損等が起きない複極式フィルタプレス型電解槽用の単位セルを提供することにある。

本発明の上記及びその他の諸目的、諸特徴ならびに諸利益は、添付の図面を参照しながら行う以下の詳細な説明及び請求の範囲の記載から明らかになる。

図面の簡単な説明

図 1 は、本発明の単位セルの気液分離室の 1 例を示す拡大概略断面図であり；

図 2 は、本発明の単位セルの気液分離室の他の 1 例を示す拡大概略断面図であり；

図 3 は、本発明の単位セルの気液分離室の更に他の 1 例を示す拡大概略断面図であり；

図 4 は、本発明の単位セルの気液分離室の更に他の 1 例を示す拡大概略断面図であり；

図 5 は、気液分離室に、本発明で用いる気泡除去用仕切壁の代わりに多孔板のみを水平方向に配置してなる気液分離室を示す拡大概略断面図（比較例）であり；

図 6 は、バッフルプレートを有する本発明の単位セルの 1 例の電極室の上部、及びその上側に設けられた気液分離室を示す拡大概略断面図であり；

図 7 は、バッフルプレートを有する本発明の単位セルの他の 1 例の電極室の上部、及びその上側に設けられた気液分離室を示す拡大概略断面図であり；

図 8 は、バッフルプレートを有さない本発明の単位セルの 1 例の電極室の上部、及びその上側に設けられた気液分離室を示す拡大概略断面図であり；

図 9 は、電解液ディストリビュータの 1 例を示す概略断面図であり；

図 10 は、電解液ディストリビュータの更に他の 1 例を示す概略断面図であり；

図 11 は、電解液ディストリビュータを示す概略側面図であり（矢印は、開口部 23 からの電解液の流出を表す）；

図 12 は、陰極室の側から見た、本発明の単位セルの 1 例を

示す概略図であり（網状の電極を実質的に取り除いた状態を示す）；

図 1 3 は、図 1 2 の単位セルの、II-II 線に沿った概略断面図であり；

図 1 4 は、本発明の単位セルを含む複数の単位セルが陽イオン交換膜を介して直列に配置されてなる複極式フィルタープレス型電解槽の 1 例を示す概略図である（本発明の単位セルの内部を見せるためにフレームの一部を取り除いた状態を示す）。

符号の説明

- 1 壁
- 2 気泡除去用仕切壁の多孔性セグメント
- 3 多孔性セグメント 2 を有する気泡除去用仕切壁
- 4 A 有孔底部壁
- 4 B 側壁
- 5 孔
- 6 リブ孔
- 7 ディストリビュータ入口ノズル
- 8 陽極室の気体及び液体の排出ノズル
- 8' 陰極室の気体及び液体の排出ノズル
- 9 導電性リブ
- 1 0 陽極室の入口ノズル
- 1 0' 陰極室の入口ノズル
- 1 1 電極

- 1 2 補強リブ
- 1 3 陽極
- 1 4 陰極
- 1 5 リード板
- 1 6 陰極側ガasket
- 1 7 陽イオン交換膜
- 1 8 陽極側ガasket
- 1 9 複極式単位セル
- 2 0 締結体
- 2 1 バッフルプレート
- 2 2 バッフルプレート 2 1 の下端部と壁 1 の内壁との間に形成されるスリット状隙間
- 2 3 電解液供給穴
- 2 4 鉤型フランジ
- 2 5 フレーム壁
- 2 6 接合棒
- 2 7 気液分離室
- 2 8 ディストリビュータ
- 2 9 陽極側単位セル
- 3 0 陰極側単位セル

図 1 ～ 1 4 においては、同様の部材又は部分は同様の参照番号で示す。

発明の詳細な説明

本発明によれば、直列に配列された複数の単位セル及び隣合う単位セルの間に挟まれた陽イオン交換膜を含む複極式フィルタープレス型塩化アルカリ金属水溶液電解槽用の単位セルであり、上記複数の単位セルの各々は

陽極室と、該陽極室の上にある陽極側非通電部に設けられ且つ該陽極室の上側の全長にわたって延びる陽極側気液分離室とを有する陽極側鍋状枠体、及び

陰極室と、該陰極室の上にある陰極側非通電部に設けられ且つ該陰極室の上側の全長にわたって延びる陰極側気液分離室とを有する陰極側鍋状枠体を包含し、

該陽極側鍋状枠体と該陰極側鍋状枠体は背中合わせに配置されており、

該陽極側気液分離室と該陰極側気液分離室は、該陽極室と該陰極室からそれぞれを仕切る有孔底部壁を有し、そして

各々の気液分離室がその一端に気体及び液体の排出ノズルを有している

単位セルにおいて、

該陽極側気液分離室と該陰極側気液分離室のうち少なくとも該陽極側気液分離室は該有孔底部壁から上方に延びる気泡除去用仕切壁を有し、

該気泡除去用仕切壁は該気液分離室の全長にわたって延び、

該気液分離室を、該底部壁の有孔域の上に形成された第 1 通路 A と、該底部壁の非有孔域の上に形成された第 2 通路 B とに仕切っており、

該気泡除去用仕切壁は多孔性セグメントを有し、

該気泡除去用仕切壁の該多孔性セグメントの孔は、該気液分離室の該底部壁の内面から少なくとも 10 mm 上に位置するように設けられており、

該第 2 通路 B は該気体及び液体の排出ノズルに通じており、且つ、該第 2 通路 B は該多孔性セグメントと該第 1 通路 A を介して該陽極室に通じている

ことを特徴とする単位セル。

が提供される。

次に、本発明の理解を容易にするために、まず本発明の基本的特徴及び諸態様を列挙する。

1. 直列に配列された複数の単位セル及び隣合う単位セルの間に挟まれた陽イオン交換膜を含む複極式フィルタープレス型塩化アルカリ金属水溶液電解槽用の単位セルであり、上記複数の単位セルの各々は

陽極室と、該陽極室の上にある陽極側非通電部に設けられ且つ該陽極室の上側の全長にわたって延びる陽極側気液分離室とを有する陽極側鍋状枠体、及び

陰極室と、該陰極室の上にある陰極側非通電部に設けられ且

つ該陰極室の上側の全長にわたって延びる陰極側気液分離室とを有する陰極側鍋状枠体を包含し、

該陽極側鍋状枠体と該陰極側鍋状枠体は背中合わせに配置されており、

該陽極側気液分離室と該陰極側気液分離室は、該陽極室と該陰極室からそれぞれを仕切る有孔底部壁を有し、そして

各々の気液分離室がその一端に気体及び液体の排出ノズルを有している

単位セルにおいて、

該陽極側気液分離室と該陰極側気液分離室のうち少なくとも該陽極側気液分離室は該有孔底部壁から上方に延びる気泡除去用仕切壁を有し、

該気泡除去用仕切壁は該気液分離室の全長にわたって延び、該気液分離室を、該底部壁の有孔域の上に形成された第1通路Aと、該底部壁の非有孔域の上に形成された第2通路Bとに仕切っており、

該気泡除去用仕切壁は多孔性セグメントを有し、

該気泡除去用仕切壁の該多孔性セグメントの孔は、該気液分離室の該底部壁の内面から少なくとも10mm上に位置するように設けられており、

該第2通路Bは該気体及び液体の排出ノズルに通じており、且つ、該第2通路Bは該多孔性セグメントと該第1通路Aを介

して該陽極室と通じている
ことを特徴とする単位セル。

2. 該陽極室と該陰極室のうち少なくとも該陽極室の上部に設けられたバッフルプレートを更に包含し、該バッフルプレートは、該バッフルプレートと該陽極との間に上昇通路Cが形成され、且つ、該バッフルプレートと該陽極室の後側内面との間に下降通路Dが形成されるように位置することを特徴とする前項1に記載の単位セル。

3. 該バッフルプレートの高さが300mm～600mmであり、

該上昇通路Cはその上端よりも下端のほうが幅広く、且つ、該バッフルプレートと該陽極との間隔が最も小さい部分での該上昇通路Cの幅が5mm～15mmであり、そして

該下降通路Dはその下端よりも上端のほうが幅広く、且つ、該バッフルプレートと該陽極室の後側内面との間隔が最も小さい部分での該下降通路Dの幅が1mm～20mmであることを特徴とする前項2に記載の単位セル。

4. 該陽極室と該陰極室のうち少なくとも該陽極室の下部に設けられたパイプ状の形態を有する電解液ディストリビュータを更に包含し、

該ディストリビュータは複数の電解液供給穴を有し、且つ、
該陽極室の電解液入口ノズルに通じる入口を有し、

各電解液供給穴の断面積が、該単位セルの運転中に、 40 A/dm^2 の電流密度で電解するための最低限の流速で飽和塩水を電解液として該ディストリビュータを通じて供給すると、各電解液供給穴での圧力損失が $50\text{ mm} \cdot \text{H}_2\text{O} \sim 1,000\text{ mm} \cdot \text{H}_2\text{O}$ となる値である

ことを特徴とする前項1～3のいずれかに記載の単位セル。

以下、本発明を詳細に説明する。

本発明の単位セルは、複極式フィルタープレス型塩化アルカリ金属水溶液電解セル用の単位セルである。

まず、本発明の単位セルの基本的な構造に関して、図12及び図13に参照して説明する（尚、多孔性セグメント2を有する気泡除去用仕切壁3、バッフルプレート21、及びディストリビュータ28に関しては後述する）。

図12は、陰極室の側から見た、本発明の単位セルの1例を示す概略図である（網状の電極を実質的に取り除いた状態を示す）。図13は、図12の単位セルのII-II線に沿った概略断面図である。

本発明において、「単位セル」とは、

陽極室と、該陽極室の上にある陽極側非通電部に設けられ且つ該陽極室の上側の全長にわたって延びる陽極側気液分離室と

を有する陽極側鍋状枠体、及び

陰極室と、該陰極室の上にある陰極側非通電部に設けられ且つ該陰極室の上側の全長にわたって延びる陰極側気液分離室とを有する陰極側鍋状枠体を包含し、

該陽極側鍋状枠体と該陰極側鍋状枠体は背中合わせに配置されており、

該陽極側気液分離室と該陰極側気液分離室は、該陽極室と該陰極室からそれぞれを仕切る有孔底部壁を有し、そして

各々の気液分離室がその一端に気体及び液体の排出ノズルを有してなる、複極式の単一のセルを意味する。

図 13 に示されるように、上記の陽極側及び陰極側鍋状枠体はそれぞれ壁 1、壁 1 の周辺部から延びるフレイム壁 25、及び鉤型の断面を有し、該フレイム壁 25 から延びる鉤型フランジ 24 を包含してなる。

上記の鉤型フランジ 24 は該フレイム壁 25 と共働して、各鍋状枠体の四周に凹部を形成している。この凹部によってそれぞれ規定される、図 13 の奥行方向に延びる貫通空間には、それぞれ接合棒 26 がはめ込まれ、これにより陽極側鍋状枠体と陰極側鍋状枠体とが背中合わせの状態に固定されている。

該陽極側鍋状枠体の壁 1 には、複数の導電性リブ 9 を介して陽極 13 が、陽極室と、その上側且つ該陽極側鍋状枠体のフレイム壁 25 の上側部分より下に陽極側非通電部を形成するよう

固定されており、該陰極鍋状枠体の仕切壁 1 には、複数の導電性リブ 9 を介して陰極 14 が、陰極室とその上側且つ該陰極鍋状枠体のフレーム壁 25 の上側部分より下に陰極側非通電部を形成するように固定されている。また、上記導電性リブ 9 は、気液を通過させるためのリブ孔 6 を有している。

陽極側気液分離室 27 は、上記陽極側非通電部に設けられ且つ上記陽極室の上側の全長にわたって延びており、陰極側気液分離室 27 は、該陰極側非通電部に設けられ且つ該陰極室の上側の全長にわたって延びている。

上記陽極側及び陰極側気液分離室 27、27 は、該陽極室と該陰極室からそれぞれを仕切る有孔底部壁 4A、4A を有している。底部壁 4A、4A はそれぞれ気泡含有電解液を電極室から気液分離室 27 に導入するための孔 5 を有している。

上記陽極側及び陰極側気液分離室 27、27 はそれぞれ気体及び液体の排出ノズル 8、8' を有している。

本発明において、上記のような気液分離室 27 を有する単位セルの基本的な構造（図 12 及び図 13 の単位セルから多孔性セグメント 2 を有する気泡除去用仕切壁 3、バッフルプレート 21、及びディストリビュータ 28 を除いた構造）に関しては、公知の単位セルと同様の構造でよい。公知の単位セルの例としては、上記日本国特開平 4-289184 号公報（米国特許第 5,225,060 号公報に対応）に記載の単位セルが挙げられる。上記日本国特開平 4-289184 号公報及びこれに対

応する米国特許第5, 225, 060号公報に関しては、これらの文献に言及することにより、その内容を本明細書に組み込むものとする。

また、本発明の単位セルの、多孔性セグメント2を有する気泡除去用仕切壁3、バッフルプレート21、及びディストリビュータ28以外の部分に関しては、上記日本国特開平4-289184号公報（米国特許第5, 225, 060号に対応）に記載の材料及び方法を用いて製造することができる。

以下、図1～4に参照して本発明の単位セルの気泡除去用仕切壁に関して説明する。

図1～4は、本発明の単位セルの気液分離室の拡大概略断面図である。

本発明の単位セルにおいては、該陽極側気液分離室27と該陰極側気液分離室27のうち少なくとも該陽極側気液分離室27は該有孔底部壁4Aから上方に延びる気泡除去用仕切壁3を有し、

該気泡除去用仕切壁3は該気液分離室27の全長にわたって延び、該気液分離室27を、該底部壁4Aの有孔域の上に形成された第1通路Aと、該底部壁4Aの非有孔域の上に形成された第2通路Bとに仕切っている。

より具体的には、該陽極側気液分離室27と該陰極側気液分離室27のうち少なくとも該陽極側気液分離室27は該有孔底部壁4Aから上方に延びる気泡除去用仕切壁3を有し、該気泡

除去用仕切壁 3 によって分けられた有孔域と非有孔域とを該有孔底部壁 4 A が有するように、該有孔底部壁 4 A の孔 5 は局在しており、該気泡除去用仕切壁 3 は該気液分離室 27 の全長にわたって延びており、該気泡除去用仕切壁 3 によって、該気液分離室 27 は、孔 5 が局在する該有孔底部壁 4 A の該有孔域を有する第 1 通路 A と、孔 5 が局在する該有孔底部壁 4 A の該非有孔域を有する第 2 通路 B とに仕切られている。

該気泡除去用仕切壁 3 は多孔性セグメント 2 を有し、該気泡除去用仕切壁 3 の該多孔性セグメント 2 の孔は、該気液分離室 27 の該底部壁 4 A の内面から少なくとも 10 mm 上に位置するように設けられており、該第 2 通路 B は該気体及び液体の排出ノズルに通じており、且つ、該第 2 通路 B は該多孔性セグメント 2 と該第 1 通路 A を介して該陽極室に通じている。

該気泡除去用仕切壁 3 を有する該気液分離室 27 は、該単位セルの運転中に、気泡を含有する液体を、該陽極室から孔 5 が局在する該有孔底部壁 4 A の該有孔域を通して該気液分離室 27 の第 1 通路 A に導入して該気泡除去用仕切壁 3 の該多孔性セグメント 2 の孔を通過させ、その際、該多孔性セグメント 2 の孔を第 2 通路 B の液面より高い位置に維持するように適合しており、それによって、該気泡を含有する液体の気泡を壊し、気泡の破壊によって生成されたガスと実質的に気泡を含まない液体とを気液分離室 27 の第 2 通路 B に導入し、第 2 通路 B に導入された該ガスと該実質的に気泡を含まない液体とは気液分離

室 27 の図 12 に示す該気体及び液体の排出ノズル 8 を通じて排出されるようになっている。

このように気泡を消去してガスと液を分離することが可能になる理由は明らかではないが、以下のようなことであると考えられる。第 1 通路 A の気泡含有電解液は、気泡除去用仕切壁 3 の多孔性セグメント 2 の孔を通過して、第 1 通路 A 上部のガスと共に、第 2 通路 B へ導入される。この際、孔内部で上記ガスと気泡含有電解液が混合され、気泡のサイズが大きくなり、気泡が破壊されやすくなると考えられる。第 2 通路 B 側において多孔性セグメント 2 は気相に面しているので、気泡が破壊されることにより液相から開放されたガスは、第 2 通路 B の気相に吸収され、気泡を除去された電解液が第 2 通路 B の下部に溜まる。このようにして分離されたガスと電解液とは、分離した状態のままで排出ノズル 8 から抜き出される。従って、圧力損失による振動が抑制され、そのためイオン交換膜の破損を防止することができる。

図 1 において気液分離室 27 は、壁 1、フレイム壁 25、側壁 4B、及び底部壁 4A により構成される。このような気液分離室 27 の場合、その断面積は製造のしやすさや製造コスト面から、通常 $10 \sim 100 \text{ cm}^2$ である。第 2 通路 B の底に流れ落ちた電解液は、ガスと分離した状態で図 12 に示す排出ノズル 8 から排出される。

図 1 においては、底部壁 4A の孔 5 を有する第 1 通路 A を壁

1の側に形成したが、図2のように側壁4Bの側に底部壁4Aの孔5を有する第1通路Aを形成してもよい。気泡除去用仕切壁3の多孔性セグメント2以外の孔を有さない部分(以下、屢々、「孔なし領域」と称す)は第1通路Aの気泡を含む液と、第2通路Bの気泡を除去した液を隔てる役割も有するので、多孔性セグメント2の孔の底部壁4Aの内面からの高さH'は第2通路B側の液面より高くなるように製作する必要がある。具体的には高さH'は少なくとも10mmである必要があり、また、図1及び図2のように気泡除去用仕切壁3が平板状の構造を有する場合は、勿論、孔なし領域の高さも10mm以上であることが必要である。また、図3に示すように、気泡除去用仕切壁3の孔なし領域が比較的高い場合は、孔なし領域の第2通路B側の側面に多孔性セグメント2が配置されていてもよい。但し、この場合も多孔性セグメント2の孔の高さH'は第2通路B側の液面より高くなるように製作する必要がある、少なくとも10mmである必要がある。

もし、多孔性セグメント2の孔が第2通路Bの液面より下に存在すると、気泡として存在するガスが孔を通過しても気相に開放されず、液相に吸収されてしまうので、第2通路Bの液相に気泡が残り、排出ノズルでの圧力変動が起こる原因となる。

第2通路Bの液面の高さに関しては、電解を行う際の電流密度が高い程、第2通路Bの液面も高くなる傾向にある。50～80 A/dm²の高電流密度で電解を行う場合、第2通路Bの

液面の高さは20～30mmになることがあるため、上記気泡除去用仕切壁3の多孔性セグメント2の高さ H' は、20mm以上であることが好ましく、30mm以上であることが更に好ましく40mm以上であることが特に好ましい。

気泡除去用仕切壁3の孔なし領域の高さに関しては、上記した気泡除去が効率よく行える限り特に限定はない。例えば、図1及び図2のように、多孔性セグメント2を有する気泡除去用仕切壁3が、底部壁4Aからほぼ垂直に延びる平板状の構造を有する場合、上記孔なし領域の高さは、気液分離室27の高さ H の90%までの範囲にあることが好ましい。孔なし領域の高さが気液分離室27の高さ H の90%を超えると、第2通路Bへ流入する電解液の圧力損失が大きくなり、通電部にガス溜まりを形成し、これによりイオン交換膜に悪影響を与えるなどの不都合が生じる恐れがある。

第1通路Aの間隔 W としては、図1であれば気泡除去用仕切壁3と仕切壁1の間隔であり、図2～4であれば側壁4Bと気泡除去用仕切壁3との間隔である。 W の大きさは2mm～20mmの範囲で有れば、圧力損失も少ないので好ましい。尚、図2～4のように側壁4Bと気泡除去用仕切壁3の間隔が不均一な場合は、最小値を間隔 W とする。間隔 W が20mmを超えると第2通路Bの幅が小さくなり、圧力損失が高まるために、気液分離している液とガスが再度混合して、排出ノズルから抜き出す際に圧力変動が大きくなり振動発生を引き起こす場合があ

る。2 mm未満ではガスや液等が通過する際に圧力損失が大きくなり、通電部にガス溜まりを形成してイオン交換膜に悪影響を与える場合がある。

気泡を消去するための気泡除去仕切壁3としては、1枚の板の上部に孔を形成したものでも、孔を有さない板に、多孔板を取り付けたものであってもよい。また、気泡除去用仕切壁3は、気液分離室27の底部壁4Aに一体化して形成されていてもよく、溶接などで気液分離室27の底部壁4Aに取り付けてもよい。気液分離室27の底部壁4Aに一体化して形成された気泡除去用仕切壁3は、例えば、気液分離室27を形成するための部材を樹脂を成形して製造する場合、底部壁4Aとなる部分が形成されるように上記部材を成形することにより得ることができる。気泡除去用仕切壁3の材料としては、塩素や苛性ソーダに対する耐久性のあるものであれば特に限定はないが、陽極側気液分離室27に設置する気泡除去用仕切壁3の場合は、チタン及びチタン合金等を用いることができ、陰極側気液分離室27に設置する気泡除去用仕切壁3の場合は、鉄、ニッケル及びステンレス等を用いることができる。その他にも塩素や苛性ソーダに対する耐久性のある素材であれば、プラスチックやセラミックなどを用いてもよい。

上記の金属製の多孔板を、孔を有さない板に取り付けて気泡除去用仕切壁3として用いる場合、多孔板としては、エキスパンデッドメタルや丸型や角形等の孔を打ち抜きしたパンチドメ

タル、金網、ワイヤーメッシュ、発泡金属等が使用できる。

また、孔を有さない板に、多孔板を取り付けて気泡除去用仕切壁 3 として用いる場合、取り付け方法には特に限定はなく、例えば、(1) 図 1 及び図 2 のように、ほぼ垂直に設けられた孔を有さない板の上端に、ほぼ垂直に多孔板を取り付ける方法、(2) 図 3 に示すように、ほぼ垂直に設けられた孔を有さない板の上端に、第 2 通路 B の側にほぼ水平なるように、もしくは斜め上又は斜め下に延びるように多孔板を取り付ける方法、(3) 図 4 に示すように、ほぼ垂直に設けられた孔を有さない板の中間部に、第 2 通路 B の側にほぼ水平なるように、もしくは斜め上又は斜め下に延びるように多孔板を取り付ける方法が挙げられる。これに関連して、電解槽の運転中に多孔板が外れないよう取り付ける必要がある。例えば、孔を有さない板及び多孔板が共に金属である場合、溶接により取り付けることが好ましい。

また、板の中間部に多孔性セグメント 2 を設けることも可能である。例えば、金属板の中間部に孔を打ち抜いて多孔性セグメント 2 を形成したものを気泡除去用仕切壁 3 として用いることもできる。

多孔性セグメント 2 の開口率は、10%～80%の範囲であることが好ましく、圧力損失や気泡除去の効率の面から、最も好ましくは30～70%の範囲である。また、気泡除去用仕切壁 3 全体に対する開口率は4～60%の範囲であることが好ま

しい。また、多孔性セグメント 2 の孔のサイズに関しては特に限定はないが、孔のサイズが大きすぎると、第 1 通路 A の気泡含有電解液が、気泡を含んだまま多孔性セグメント 2 を通過して、気泡が壊れずに第 2 通路 B の底部の液と混合される恐れがある。従って、各孔の面積が 150 mm^2 以下であることが好ましく、 80 mm^2 以下であることが更に好ましい。また、多孔性セグメント 2 の孔の平均面積は、 $0.2 \sim 80\text{ mm}^2$ であることが好ましく、 $3 \sim 60\text{ mm}^2$ であることが更に好ましい。孔の数に関しては、上記の開口率、及び孔の平均面積によって決まる。

気泡除去を効率よく行える限り、孔の分布に関しては限定はないが、なるべく均一であることが好ましい。具体的な孔の設け方としては、例えば、直径 2 mm の円形の穴を 3 mm ピッチで 1 cm^2 あたり 19 個、又は対角線の長さが 7 mm 及び 4 mm の菱形の孔を 10 cm^2 あたり 35 個のように設けることができる。

また、多孔性セグメント 2 は、例えば開口率の異なる 2 枚の多孔板を貼り合わせたものであってもよい。

気泡除去用仕切壁 3 の厚みに関しては、十分な強度が得られ、且つ圧力損失もなく気泡除去が行えれば特に限定はなく、不均一であってもよい。具体的には、気泡除去用仕切壁 3 の厚みは $0.1\text{ mm} \sim 5\text{ mm}$ の範囲であることが好ましい。

気泡除去用仕切壁 3 の角度に関しては、第 1 通路 A の気泡含

有電解液を、多孔性セグメント 2 の孔を介して第 2 通路 B の気相に導入できる限り特に限定されない。また、気泡除去用仕切壁 3 の孔なし領域と多孔性セグメント 2 が底部壁 4 A に対して異なる角度で設けられていてもよい。具体的には、例えば、図 1 及び図 2 に示す如く、多孔性セグメント 2 は、ほぼ垂直に設けられた孔なし領域の上端からほぼ垂直に延びていてもよく、或いは図 3 に示すようにほぼ垂直に設けられた孔なし領域の上端から、第 2 通路 B の側にほぼ水平に延びていてもよく、或いは斜め上又は斜め下に延びていてもよい。但し、上記したように多孔性セグメント 2 の孔は、第 2 通路 B の液面より高い位置に維持されなければならない。

更に、気泡除去用仕切壁 3 は、多孔性セグメント 2 を複数有していてもよい。例えば、気泡除去用仕切壁 3 は、図 1 及び図 2 に示すような、孔なし領域の上端からほぼ垂直に延びる多孔性セグメント 2 と、図 3 に示すような孔なし領域の上端から、第 2 通路 B の側にほぼ水平に延びる多孔性セグメントとの両方を有していてもよい。

上記多孔性セグメント 2 の一端は、上記孔なし領域に接合している必要があるが、他の一端は気液分離室の内壁まで延びていなくてもよい。例えば、図 1 及び図 2 に示す如く気泡除去用仕切壁 3 をほぼ垂直に設ける場合は、多孔性セグメント 2 の高さが、気液分離室の高さ H と孔なし領域の高さ H' の差の $1/2$ 以上であることが好ましい。高電流密度でも効果的に気泡を消

去する観点から、多孔性セグメント 2 は高いほど好ましい。更に、単位セルの製造の簡便さの観点からは、図 1 と図 2 に示すように、多孔性セグメント 2 は上記 H と H' との差と同じ（即ち、多孔性セグメント 2 が気液分離室の上側内壁（上側フレーム壁 25）にまで延びている）ことが好ましい。図 3 及び図 4 に示す如く、多孔性セグメント 2 をほぼ水平に設ける場合においても、図 3 及び図 4 に示すように多孔性セグメント 2 が気液分離室 27 の横側内壁（壁 1 の内壁）にまで延びて気泡除去用仕切壁 3 が第 2 通路 B を完全に覆うことが好ましい。多孔性セグメント 2 をほぼ水平に設ける場合に、気泡除去用仕切壁 3 が第 2 通路 B を完全に覆っていないと、多孔性セグメント 2 と気液分離室 27 の内壁との隙間を通して第 1 通路 A から第 2 通路 B に気泡含有液が流れ落ちて有効に気泡を消去できない場合がある。

上記のように、気泡除去用仕切壁 3 に関しては、第 1 通路 A の気泡含有電解液を、多孔性セグメント 2 の孔を介して第 2 通路 B の気相に導入できる限り、様々な形状、サイズをとり得る。しかし、単位セルの製造の簡便さ、及び気泡除去の効率の観点から、気泡除去用仕切壁 3 は、（1）図 1 及び図 2 に示す如く、多孔性セグメント 2 を含む気泡除去用仕切壁 3 が、底部壁 4 A からほぼ垂直に上方に延びる、気液分離室 27 の高さ H と同じ高さを有する平板状の構造、（2）図 3 に示す如く、孔なし領域が底部壁 4 A からほぼ垂直に上方に延び、多孔性セグメント

2 が孔なし領域の上端部から壁 1 の内壁まで、ほぼ水平に延びてなる逆 L 字型の構造、又は (3) 図 4 に示す如く、孔なし領域が底部壁 4 A からほぼ垂直に上方に延び、多孔性セグメント 2 が孔なし領域の第 2 通路 B 側の側面から壁 1 の内壁まで、ほぼ水平に延びてなる T 型の構造を有することが好ましい。

また、図 5 に示すように、気液分離室 27 に、本発明で用いる気泡除去用仕切壁 3 の代わりに多孔板 2 のみを水平方向に配置した場合、殆ど気泡除去効果が無い(後述する比較例 1 参照)。

気液分離室 27 にガス、電解液、気泡が流入する底部壁 4 A の孔 5 のサイズに関しては、例えば図 1 および図 2 であれば上記の間隔 W 以下の径を有する孔であればよい。孔 5 の形状に関しては特に限定はないが、例としては、円形、楕円形、正方形、長方形、菱形等が挙げられる。孔 5 の開口率は、第 1 通路 A の底部面積(即ち、「第 1 通路 A の幅 W × 気液分離室の長さ」)に対して、10%～80%の範囲が好ましい。10%未満では、ガスや液等が孔 5 を通過する際に圧力損失が大きくなり、通電部にガス溜まりを形成してイオン交換膜に悪影響を与える場合が有る。80%より大きすぎると、気液分離室の強度が弱くなるため、単位セルにガasketとイオン交換膜を装着して締め付ける際に、変形する等の問題点が生じる場合がある。

上記の気泡除去用仕切壁 3 は陽極側気液分離室 27 と陰極側気液分離室 27 のうち少なくとも陽極側気液分離室 27 に設ける。陽極側は、特に気泡の影響が大きいので、陽極側にのみ気

泡除去用仕切壁 3 を設けても十分な効果が得られる。

気液分離室 27 の側壁 4B の形状は、平坦であってもよいが、図 1 ～ 4 に示すように、下部が外側に出っばっていることが好ましい。即ち、下部出っばり部により、気液分離室 27 と図 14 に示すガスケット 16、18 の密着性を上げることができる。また、ガスケット 16、18 の幅を均一にしておけば、電解槽を組み立てる際にガスケットの面圧を各部一定にすることができる。

また、本発明の単位セルは、図 6 及び図 7 に示すように、該陽極室と該陰極室のうち少なくとも該陽極室の上部に設けられたバッフルプレート 21 を更に包含し、該バッフルプレート 21 は、該バッフルプレート 21 と該陽極 11 との間に上昇通路 C が形成され、且つ、該バッフルプレートと該陽極室の後側内面（壁 1 の内壁）との間に下降通路 D が形成されるように位置することが好ましい。

例えば、陽極室内上部にバッフルプレート 21 を設置することにより、単位セル下部へ電解液を戻して循環することが可能になるのみならず、気泡を含む電解液を、陽極室上部でのガスの滞留もなく速やかに気液分離室 27 に導くことも可能になる。

バッフルプレート 21 の下端は壁 1 とスリット状の隙間 22 を形成しており、バッフルプレート 21 の上部から下降通路 D に流れ込んだ液が、この隙間 22 を通って陽極室下部に戻り、上昇通路 C を介して電解液が循環するような構造になって

いる。

陽極 1 1 とバッフルプレート 2 1 により形成される上昇通路 C は、電解液と気泡、ガスの混合物が通過する。電解液と、電解により生成したガスと気泡との混合物が、バッフルプレート 2 1 の上端と電解室上端の間を通過し電解液の一部とガスは、孔 5 より気液分離室 2 7 に入り、残りの電解液はバッフルプレート 2 1 と壁 1 との間の下降通路 D を通って流れ落ち、スリット状隙間 2 2 を通って電解室下部に戻る。

したがってバッフルプレート 2 1 により電解液の内部循環を起こすことができるので、電解液やガスの滞留もなく、 50 A/dm^2 以上の高電流密度でも濃度分布の均一化が達成できる。

バッフルプレート 2 1 の厚みは $0.5 \sim 1.5\text{ mm}$ であることが好ましく、長さは $300 \sim 700\text{ mm}$ であることが好ましい。幅に関しては、電解液を循環する効果を高めるために、単位セルの幅に近いほど好ましく、図 1 2 のように単位セルの幅と同じであることが最も好ましい。バッフルプレート 2 1 の材質に関しては、陽極側の場合、塩素に対して耐食性を有するチタンや、テフロン等の樹脂が挙げられ、陰極側の場合、アルカリに対して耐食性のあるステンレスチール、ニッケル等を挙げることができる。

また、バッフルプレート 2 1 の取り付け方法に関しては特に限定はないが、リブ 9 の間隔と同じ幅のバッフルプレート 2 1 をリブ 9 に溶接などの方法で固定する方法、リブ 9 にバッフル

プレート 21 取り付け用の溝を設け、その溝にバッフルプレート 21 をはめ込む方法などが挙げられる。

図 6 及び図 7 に示す下降通路 D の断面積は、製作のしやすさや製作コスト面から、通常 10 cm^2 以上で 200 cm^2 以下のものが用いられる。バッフルプレート 21 は、上昇通路 C の気泡を含む液と、下降通路 D にある電解液を隔て、ガスの上昇力によって電解液を気液分離室 27 や上昇通路 C へ運び上げる通路でもある。バッフルプレート 21 の高さ H^2 は 300 mm ～ 700 mm が好ましい。この理由は、出来るだけ液循環を多くするためには、上昇通路 C の上部での組成と下降通路 D の上部での組成の違いを大きくする必要があるため、バッフルプレート 21 の高さを大きくすることが有利であるからである。

バッフルプレート上端と通電部の上端の間隔 S は、 5 mm ～ 200 mm の範囲が好ましい。この間隔 S が狭すぎると、ガスが滞留しやすくなり、広すぎると通電部上部の電解液の攪拌不足となり、イオン交換膜に悪影響を与えることになる。

上昇通路 C の間隔は、バッフルプレート 21 と電極 11 との間隔 W^2 とすると、 W^2 の大きさは 5 mm ～ 15 mm の範囲であれば、圧力損失も少ないので好ましい。 15 mm を超えると上昇通路 C を通過する電解液の上昇速度が遅くなって攪拌効果が得にくい傾向にあり、電解液濃度低下等が生ずる可能性がある。 5 mm 未満ではガスや液等が通過する際に圧力損失が大きくなり、上昇通路 C を通過する電解液量が減少する場合がある。

バッフルプレート 21 の下端部と壁 1 の内壁の間に形成されるスリット状の隙間の間隔 W_2' は、1 mm ~ 20 mm、さらには 1 mm ~ 10 mm 程度が好ましい。1 mm 未満では、圧力損失がおおきくなり下降通路 D を介して電解液の循環が不良となる。20 mm を超えると、スリット部分から電解液やガスがショートパスして下降通路 D に入り込むため、液の循環が生じなくなる場合がある。

バッフルプレート 21 の断面の形状は、種々考えられるが、例えば図 6 に示す屈曲板状の形状や、図 7 に示す平板状の形状が考えられる。また、バッフルプレート 21 はその表面に凹凸があると、ガスや液の上昇速度に影響を与え、例えば、陽極室内での電解液の濃度分布が不均一になる恐れがあるので、バッフルプレート 21 の表面は平らであることが好ましい。

以上述べたように、バッフルプレート 21 を取り付けることにより、単位セル上部の気泡の多い部分の攪拌と内部循環を可能にすることができる。したがって 50 A/dm^2 以上の高電流密度でも、単位セル内の濃度分布を均一にでき、イオン交換膜への悪影響が全く生じない。

本発明の単位セルにおいては、所望により、電解液ディストリビュータを設けることができる。電解液ディストリビュータの 1 例が、図 12 と図 13 において参照番号 28 で示されている。

図 9 は、電解液ディストリビュータの 1 例を示す概略断面図

である。図 10 は、電解液ディストリビュータの更に他の 1 例を示す概略断面図である。図 11 は、電解液ディストリビュータを示す概略側面図である（矢印は、開口部 23 からの電解液の流出を表す）。電解液ディストリビュータを用いることにより、単位セルの水平・長手方向（図 12 における横方向）の電解液の濃度分布を均一にすることができる。

即ち、本発明の好ましい態様においては、本発明の単位セルは、該陽極室と該陰極室のうち少なくとも該陽極室の下部に設けられたパイプ状の形態を有する電解液ディストリビュータを更に包含し、

該ディストリビュータは複数の電解液供給穴を有し、且つ、該陽極室の電解液入口ノズルに通じる入口を有し、

各電解液供給穴の断面積が、該単位セルの運転中に、 40 A/dm^2 の電流密度で電解するための最低限の流速で飽和塩水を電解液として該ディストリビュータを通じて供給すると、各電解液供給穴での圧力損失が $50\text{ mm} \cdot \text{H}_2\text{O} \sim 1,000\text{ mm} \cdot \text{H}_2\text{O}$ となる値である。

電解液ディストリビュータの断面の形状は丸形、角形いずれでも適用できる。電解液ディストリビュータから電解液を流出させるための電解液供給穴 23 は、単位セルの水平・長手方向に電解液のできるだけ均一な流量を確保する観点からは、できるだけ多い方が好ましい。しかし、あまり多数の電解液供給穴 23 を設けると加工がしにくくなるため、その数は 10 個～5

0 個程度が適当である。好ましくは 1 5 個～4 0 個の範囲である。

また電解液ディストリビュータから電解液を均一に供給させるためには、各電解液供給穴 2 3 にある程度以上の圧力損失を持たせることが好ましい。本発明者等の実験によると、 40 A/dm^2 で電解した場合に各電解液供給穴 2 3 での圧力損失が $50\text{ mm} \cdot \text{H}_2\text{O}$ 未満では均一な供給が得られないことがわかった。そのため、均一な供給が得られる各電解液供給穴 2 3 の断面積について検討した結果、各電解液供給穴の断面積が、該単位セルの運転中に、 40 A/dm^2 の電流密度で電解するための最低限の流速で飽和塩水を電解液として該ディストリビュータを通じて供給すると、各電解液供給穴での圧力損失が $50\text{ mm} \cdot \text{H}_2\text{O} \sim 1,000\text{ mm} \cdot \text{H}_2\text{O}$ となる値であれば、均一な供給が得られることを見いだした。なお、上記の条件での圧力損失が $1,000\text{ mm} \cdot \text{H}_2\text{O}$ を超える場合は、電解液供給穴 2 3 の断面積が小さすぎて、微細な不純物粒子で詰まりなどを起こしやすく、かえって均一な流出ができないこともわかった。実用上もっとも好ましい圧力損失は、 $100\text{ mm} \cdot \text{H}_2\text{O} \sim 600\text{ mm} \cdot \text{H}_2\text{O}$ の範囲である。

電解液ディストリビュータに設けられる電解液供給穴 2 3 の断面形状は、特に限定されないが、丸形、角形等が製作しやすいので好ましい。またこの電解液供給穴 2 3 の断面積は、圧力損失や穴の個数、電解液供給量によって異なるが、通常は 10

$\text{mm}^2 \sim 1 \text{mm}^2$ の範囲が好ましい。

電解液ディストリビュータの中空部断面積は特に限定されないが、通常、 $1 \text{cm}^2 \sim 20 \text{cm}^2$ の範囲が好ましい。電解液ディストリビュータの長さは、電極室に収容可能な長さであれば特に限定されないが、通常、単位セルの電極室の水平・長手方向の長さの70%以上で100%以下の範囲が好ましい。電解液ディストリビュータの材質としては、陽極室に設けるものについては、塩素に対して耐食性のあるもの、例えばチタンやテフロンを使用でき、陰極室に設けるものについてはアルカリに対して耐食性のあるもの、例えばニッケルやステンレススチールを使用できる。

図12及びそのII-II線に沿った概略断面図である図13に示す本発明の単位セルの1例では、バッフルプレート21及び電解液ディストリビュータ28が取り付けられている。

図13に示す本発明の単位セルの1例においては、陽極側気液分離室27が、その有孔底部壁4Aから上方に延び且つ多孔性セグメント2を有する気泡除去用仕切壁3を有している。

図14は、本発明の単位セルを含む複数の単位セル19が陽イオン交換膜17を介して直列に配置されてなる複極式フィルタープレス型電解槽の1例を示す概略図である（本発明の単位セルの内部を見せるためにフレームの一部を取り除いた状態を示す）。図14に示す例では、5個の単位セル19を、隣合う単位セルの間に陽極側ガスケット18と陽イオン交換膜17と

陰極側ガasket 16を挟むように直列に配列し、更にその一方の端に陽極単位セル29を、そしてもう一方の端に陰極単位セル30を配して積層体（スタック）を形成し、その積層体を締結体20で締結してある。上記の陽極単位セル29と陰極単位セル30にそれぞれ取り付けられた2個の電流リード板15が上記の積層体の両端に位置する。電流リード板15を通じて各単位セルに電圧を印加する。

本発明の単位セルを用いた複極式フィルタプレス型電解槽を用いて電解を行なうと、例えば 50 A/dm^2 以上の高電流密度で電解を行う場合においても、ガスと電解液を実質的に完全に分離した状態で排出することができるので、単位セル内の振動を大幅に抑制でき、電解槽の振動によるイオン交換膜の破損等の悪影響を抑制することができる。従って、本発明の単位セルは、工業的に極めて有利である。

発明を実施するための最良の形態

次に実施例および比較例により本発明を具体的に説明するが、本発明の範囲はこれらの例によって限定されるものではない。

実施例 1

図 2 と同様の気液分離室 27、図 7 と同様なバッフルプレート 21、図 9、図 11 と同様の形状のディストリビュータ 28 を有し、図 12 と同様の正面形状を持ち、図 13 と同様の断面形状を持つ複極式単位電解セル 19 を 8 個用意し、それらを、隣合うセルの間に陰極側ガスケット 16、イオン交換膜 17 及び陽極側ガスケット 18 を挟む形で直列に並べ、その一方の端に陽極単位セル 29 及びもう一方の端に陰極単位セル 30 を配して電流リード板 15 を取り付け、図 14 に示すような複極式フィルタープレス型電解槽を組み立てた。

各単位セル 19 は、横幅が 2400 mm、高さが 1280 mm、陽極室の内面厚み（陽極の内面から陽極室の後側内面（壁 1 の内壁）までの距離）34 mm、陰極室の内面厚み（陰極の内面から陰極室の後側内面（壁 1 の内壁）までの距離）22 mm、通電面積 2.7 m^2 で、陽極側気液分離室 27 の長さは 2362 mm、高さ H は 86 mm、幅 30 mm、断面積 25.8 cm^2 で、陰極側気液分離室 27 の長さは 2362 mm、高さは 86 mm、幅 18 mm、断面積は 15.

48 cm²で、陽極側気液分離室27のみ図2と同様な構造とした。すなわち、陽極側気液分離室27の第1通路Aの幅Wが5 mmとなるように、気液分離室の全長にわたる長さを有し、高さH'が50 mmで厚み1 mmのチタン製板（孔を有さない）を、気液分離室27の孔5が局在する有孔底部壁4Aに溶接によって取付け、そのチタン製板の上端から垂直に気液分離室27の上端までの高さで、開口率約59%、厚み1 mmのチタン製エクспанデッドメタル2（垂直方向の対角線の長さが4 mm、水平方向の対角線の長さが7 mmの菱形の開口部を10 cm²当たり35個有する多孔板）を溶接によって取り付けた。こうして、チタン製板と多孔板2からなる気泡除去用仕切壁3によって、陽極側気液分離室27を、孔5が局在する有孔底部壁4Aの有孔域を有する第1通路Aと、孔5が局在する有孔底部壁4Aの該非有孔域を有する第2通路Bとに仕切った。

陽極側気液分離室27の有孔底部壁4Aの孔5は、短径5 mm、長径22 mmの楕円型のものを37.5 mmピッチで設けた。陽極側気液分離室27の有孔底部壁4Aの開口率は、第1通路Aの底部面積（即ち、「第1通路Aの幅W×気液分離室の長さ」）に対して56%であった。

陰極側気液分離室27の有孔底部壁4Aの孔5は、直径10 mmのものを20 mmピッチで設けた。

バッフルプレート21としては、図7の断面形状を有する

厚み 1 mm のチタンプレートを陽極室のみに設けた。バッフルプレート 21 の高さ H^2 は 500 mm とし、バッフルプレート 21 と陽極 11 との間の上昇通路 C の上端の幅 W^2 を 10 mm とし、また、バッフルプレート 21 と陽極室の後側内面（壁 1 の内壁）との間の下降通路 D の下端の幅 $W^{2'}$ を 3 mm とした。このチタン製バッフルプレート 21 の上端から垂直に測った陽極室上端までの高さ S は 40 mm とした。

ディストリビュータ 28 としては、図 9、図 11 に示す形状の、220 cm の長さで、4 cm² の中空部断面積を持つ角形パイプ状構造体に直径 2 mm の穴 23 を等間隔に 24 個形成したものをを用いた。このディストリビュータ 28 の両端は閉じており、一方の端部の側壁に、ディストリビュータ入り口ノズル 7 を有する。このディストリビュータ 28 を、陽極室の下端から 50 mm の位置に水平に取り付け、該ディストリビュータ入り口ノズル 7 を陽極側電解液入り口ノズル 10 の内側開口部と接合した。このディストリビュータ 28 の各々の穴 23 の圧力損失は、40 A / dm² で電解するための最低限の飽和塩水供給速度に相当する 150 リッター / Hr の流速で飽和塩水を流した時に約 150 mm · H₂O であった。

陽極 13 は、チタン製エキスパンデッドメタルの表面に、ルテニウム、イリジウム、チタンを成分とする酸化物からなる陽極活物質を被覆することにより製作し、陰極 14 はニッ

ケル製エクスパンデッドメタルの表面に酸化ニッケルを主成分とした陰極活物質をプラズマ溶射して製作したものを用いた。

このような単位電解セル 19、19 の隣合うものどうしの間に、陽イオン交換膜 A C I P L E X（登録商標）F 4 2 0 2（日本国、旭化成工業株式会社製）を、ガスケットを介して挟み、複極式フィルタープレス型電解槽を組み立てた。各対の陽極 13 と陰極 14 の間の距離は約 2 mm であった。

この電解槽の陽極室側に、陽極液として、電解セル出口での塩水濃度が 200 g / リットルとなるように 300 g / リットルの塩水を供給し、陰極室側には、電解セル出口での苛性ソーダ濃度が 32 重量% となるように希薄苛性ソーダを供給し、電解温度 90℃、電解時の絶対圧力で 0.14 MPa、電流密度 30 A / dm² ~ 60 A / dm² の範囲で 10 日間電解した。

電解中の電解セル内の陽極液濃度分布の評価は、陽極室の上端から 150 mm、600 mm、1000 mm 下の 3 つの高さの位置の各々で、陽極室の中央部及び陽極室の両端から各々 100 mm 内側の位置にあたる 3 点、即ち合計 9 点で陽極液をサンプリングして濃度を測定し、その 9 つのサンプルの間の最大濃度と最小濃度の差を調べることによって行なった。

電解中の電解セル内の振動は、陽極側気液分離室の底部か

ら 10 mm 下の位置にあたる陽極室の部分（即ち陽極室の上端から 10 mm 下の位置）に圧力検出用チューブの一端を差し込み、もう一方の端を圧力センサーに連結し、センサーからの出力を日本国、横河電気（株）製のアナライジングレコーダー 3655E に接続して測定した。測定された圧力の最大値と最小値の差を振動とした。

電解中の電解セル内の振動と濃度分布（濃度差）を測定した結果を表 1 に示す。表 1 に示すように、 $60 \text{ A} / \text{dm}^2$ もの高い電流密度でも、電解セル内の振動は水柱で 5 cm 未満であり、濃度差は 0.35 N であった。

実施例 2

陽極側気液分離室 27 の構造としては、実施例 1 で用いたのと同じチタン製板を同じ位置に取付け、その上端から水平に第 2 通路 B と同一幅のチタン製エキスパンデッドメタル 2（実施例 1 で用いたのと同じ開口率と孔サイズを有する多孔板）を取り付けた図 3 の構造とし、バッフルプレート 21（図 7 に示すのと同様な構造を有する）の高さ H^2 を 400 mm とした以外は実施例 1 と同様の構造を有する単位電解セルを準備した。この単位電解セルを用いて、実施例 1 と同様にして電解槽を組み立て、同一条件で電解をおこなった。

電解中の電解セル内の振動と濃度差を測定した結果を表 1 に示す。表 1 に示すように、 $60 \text{ A} / \text{dm}^2$ もの高い電流密

度でも、電解セル内の振動は水柱で5 cm未満であり、濃度差も0.32 Nであった。

実施例 3

バッフルプレート 21 とディストリビュータ 28 を取り付けていない以外は実施例 1 と同様の構造を有する単位電解セルを準備した。この単位電解セルを用いて、実施例 1 と同様にして電解槽を組立て、同一条件で電解をおこなった。

電解中の電解セル内の振動と濃度差を測定した結果を表 1 に示す。表 1 に示すように、 $60 \text{ A} / \text{dm}^2$ もの高い電流密度でも、電解セル内の振動は水柱で5 cm未満であり、濃度差は0.95 Nであった。

比較例 1

陽極側気液分離室 27 の構造としては、図 5 の如く、気液分離室 27 の有孔底部壁 4A は中央に直径 10 mm の孔 5 が 20 mm ピッチで設けてあり、実施例 1 と同様な多孔板（チタン製エクспанデッドメタル）を気液分離室 27 の有孔底部壁 4A から 2 mm 上方に水平に取り付け、またバッフルプレート 21 とディストリビュータ 28 を設けない以外は実施例 1 と同様の構造を有する単位電解セルを準備した。気液分離室の有孔底部壁の開口率は 11 % であった。この単位電解セルを用いて、実施例 1 と同様にして電解槽を組立て、同一

条件で電解した。

電解中の電解セル内の振動を測定した結果を表1に示す。
表1に示すように、電解セル内の振動は 50 A/dm^2 では水柱で 15 cm 、 60 A/dm^2 では 32 cm に達し、濃度差は 60 A/dm^2 で 0.93 N にも達した。この結果から、高い電流密度で電解を行なうと、振動を防止する効果に乏しく、また、濃度分布（濃度の不均一さ）が大きいことがわかる。

比較例 2

陽極側気液分離室内には何も仕切壁がなく、気液分離室の有孔底部壁は中央に直径 10 mm の孔が 20 mm ピッチで設けてある構造とした以外は実施例1と同様の構造を有する電解セルを準備した（なお、実施例1と同様なプレート及びディストリビュータを設けた）。気液分離室の有孔底部壁の開口率は 11% であった。この単位電解セルを用いて、実施例1と同様にして電解槽を組立て、同一条件で電解した。

電解中の電解セル内の振動を測定した結果を表1に示す。
表1に示すように、電解セル内の振動は 50 A/dm^2 では水柱で 21 cm 、 60 A/dm^2 では 38 cm に達し、濃度差は 60 A/dm^2 で 0.37 N であった。この結果から、高い電流密度で電解を行なうと、振動を防止する効果に乏しいことがわかる。

表 1

		電 流 密 度 (A / d m ²)			
		3 0	4 0	5 0	6 0
振 動 cm-H ₂ O	実 施 例 1	5 未 満	5 未 満	5 未 満	5 未 満
	実 施 例 2	5 未 満	5 未 満	5 未 満	5 未 満
	実 施 例 3	5 未 満	5 未 満	5 未 満	5 未 満
	比 較 例 1	5 未 満	5	1 5	3 2
	比 較 例 2	5 未 満	9	2 1	3 8
陽 極 液 の 濃 度 差 (N) *)	実 施 例 1	0 . 1 7	0 . 2 1	0 . 2 7	0 . 3 5
	実 施 例 2	0 . 1 6	0 . 2 1	0 . 2 6	0 . 3 2
	実 施 例 3	0 . 4 9	0 . 6 8	0 . 8 1	0 . 9 5
	比 較 例 1	0 . 5 2	0 . 6 6	0 . 7 8	0 . 9 3
	比 較 例 2	0 . 1 9	0 . 2 3	0 . 2 7	0 . 3 7

*) 「陽極液の濃度差」は最大濃度と最小濃度の差を意味する。

産業上の利用可能性

本発明の単位セルを用いた複極式フィルタプレス型電解槽を用いて電解を行なうと、例えば $50 \text{ A} / \text{dm}^2$ 以上の高電流密度で電解を行う場合においても、ガスと電解液を実質的に完全に分離した状態で排出することができるので、単位セル内の振動を大幅に抑制でき、電解槽の振動によるイオン交換膜の破損等の悪影響を抑制することができる。

また、本発明の単位セルが、陽極室及び陰極質のうち少なくとも陽極室にバッフルプレート及び／又は電解液ディストリビュータを有していると、陽極室内で電解液を効率よく循環させることが可能となるため、例えば $50 \text{ A} / \text{dm}^2$ 以上の高電流密度で電解を行う場合でも、陽極室内の電解液の濃度分布を均一に保つことにより、電解を効率よく行うことができる。

請 求 の 範 囲

1. 直列に配列された複数の単位セル及び隣合う単位セルの間に挟まれた陽イオン交換膜を含む複極式フィルタープレス型塩化アルカリ金属水溶液電解槽用の単位セルであり、上記複数の単位セルの各々は

陽極室と、該陽極室の上にある陽極側非通電部に設けられ且つ該陽極室の上側の全長にわたって延びる陽極側気液分離室とを有する陽極側鍋状枠体、及び

陰極室と、該陰極室の上にある陰極側非通電部に設けられ且つ該陰極室の上側の全長にわたって延びる陰極側気液分離室とを有する陰極側鍋状枠体を包含し、

該陽極側鍋状枠体と該陰極側鍋状枠体は背中合わせに配置されており、

該陽極側気液分離室と該陰極側気液分離室は、該陽極室と該陰極室からそれぞれを仕切る有孔底部壁を有し、そして

各々の気液分離室がその一端に気体及び液体の排出ノズルを有している

単位セルにおいて、

該陽極側気液分離室と該陰極側気液分離室のうち少なくとも該陽極側気液分離室は該有孔底部壁から上方に延びる気泡除去用仕切壁を有し、

該気泡除去用仕切壁は該気液分離室の全長にわたって延び、該気液分離室を、該底部壁の有孔域の上に形成された第1通路Aと、該底部壁の非有孔域の上に形成された第2通路Bとに仕切っており、

該気泡除去用仕切壁は多孔性セグメントを有し、

該気泡除去用仕切壁の該多孔性セグメントの孔は、該気液分離室の該底部壁の内面から少なくとも10mm上に位置するように設けられており、

該第2通路Bは該気体及び液体の排出ノズルに通じており、且つ、該第2通路Bは該多孔性セグメントと該第1通路Aを介して該陽極室に通じていることを特徴とする単位セル。

2. 該陽極室と該陰極室のうち少なくとも該陽極室の上部に設けられたバッフルプレートを更に包含し、該バッフルプレートは、該バッフルプレートと該陽極との間に上昇通路Cが形成され、且つ、該バッフルプレートと該陽極室の後側内面との間に下降通路Dが形成されるように位置することを特徴とする請求項1に記載の単位セル。

3. 該バッフルプレートの高さが300mm～600mmであり、

該上昇通路Cはその上端よりも下端のほうが幅広く、且つ、

該バッフルプレートと該陽極との間隔が最も小さい部分での該上昇通路 C の幅が 5 mm ~ 15 mm であり、そして

該下降通路 D はその下端よりも上端のほうが幅広く、且つ、該バッフルプレートと該陽極室の後側内面との間隔が最も小さい部分での該下降通路 D の幅が 1 mm ~ 20 mm であることを特徴とする請求項 2 に記載の単位セル。

4. 該陽極室と該陰極室のうち少なくとも該陽極室の下部に設けられたパイプ状の形態を有する電解液ディストリビュータを更に包含し、

該ディストリビュータは複数の電解液供給穴を有し、且つ、該陽極室の電解液入口ノズルに通じる入口を有し、

各電解液供給穴の断面積が、該単位セルの運転中に、 40 A/dm^2 の電流密度で電解するための最低限の流速で飽和塩水を電解液として該ディストリビュータを通じて供給すると、各電解液供給穴での圧力損失が $50 \text{ mm} \cdot \text{H}_2\text{O} \sim 1,000 \text{ mm} \cdot \text{H}_2\text{O}$ となる値であることを特徴とする請求項 1 ~ 3 のいずれかに記載の単位セル。

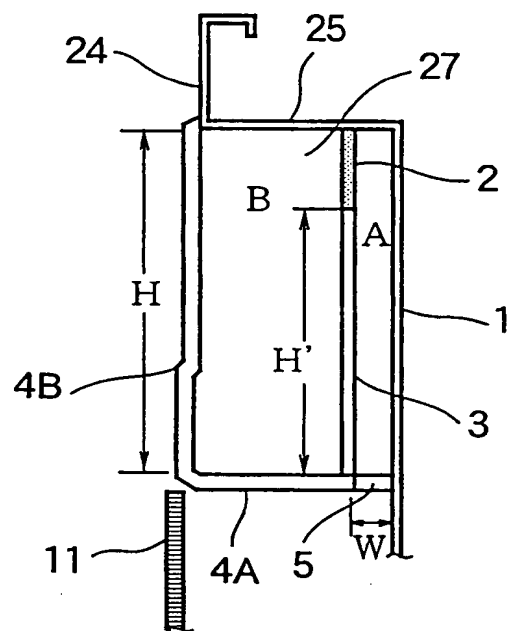
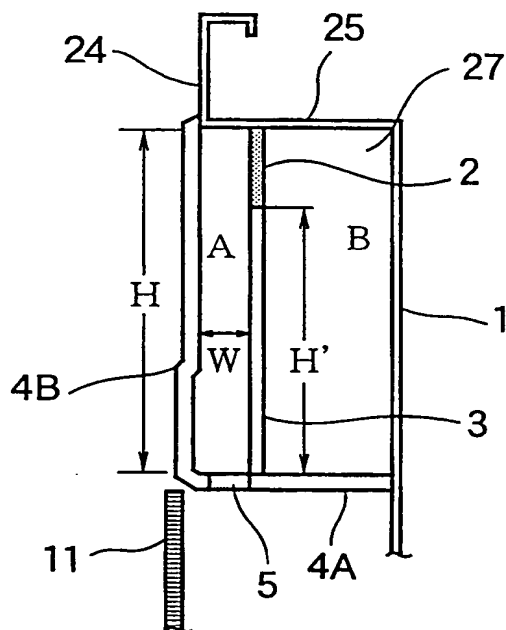
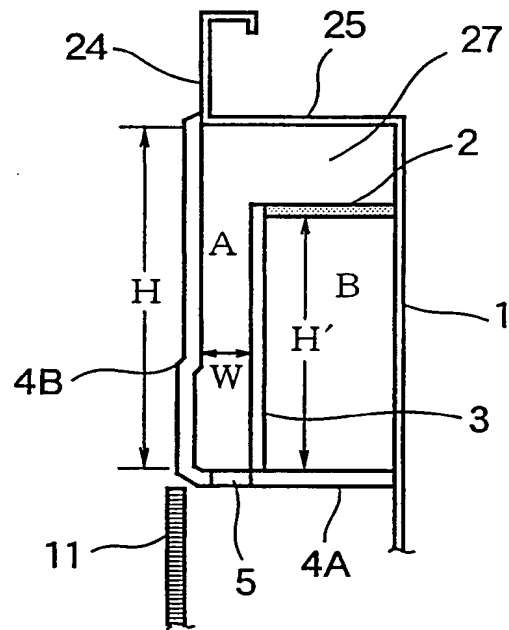
1/10
FIG.1

FIG.2



2/10
FIG.3

3/10

FIG.4

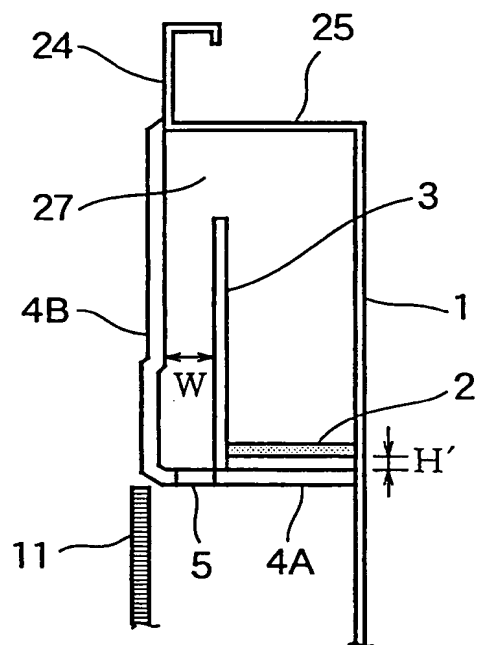
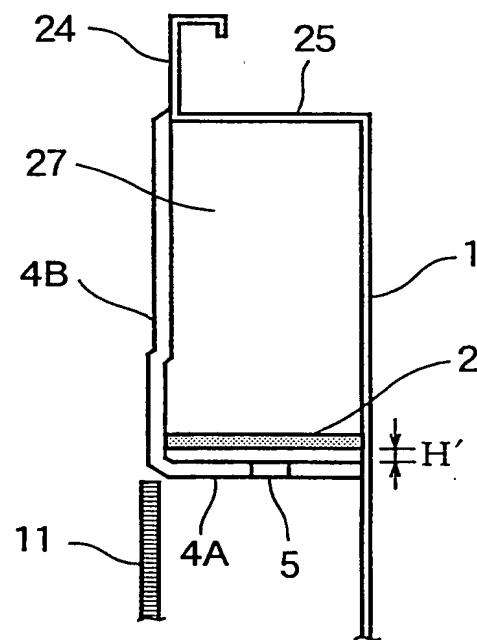
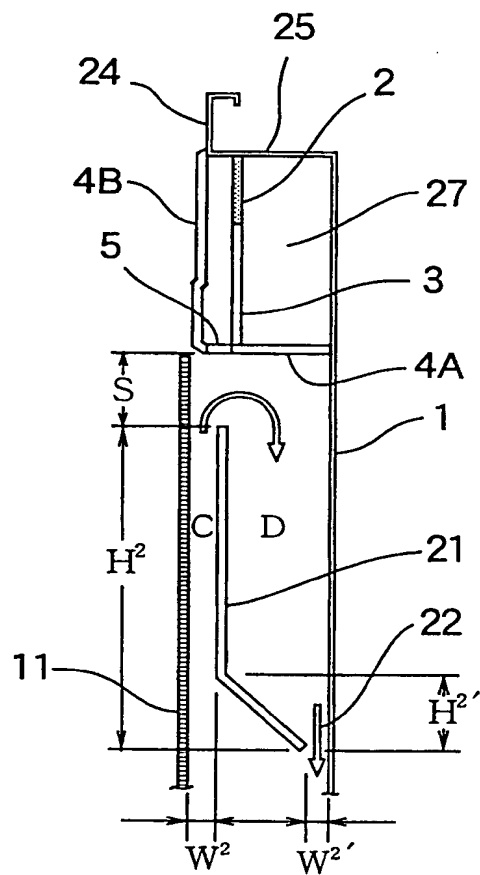


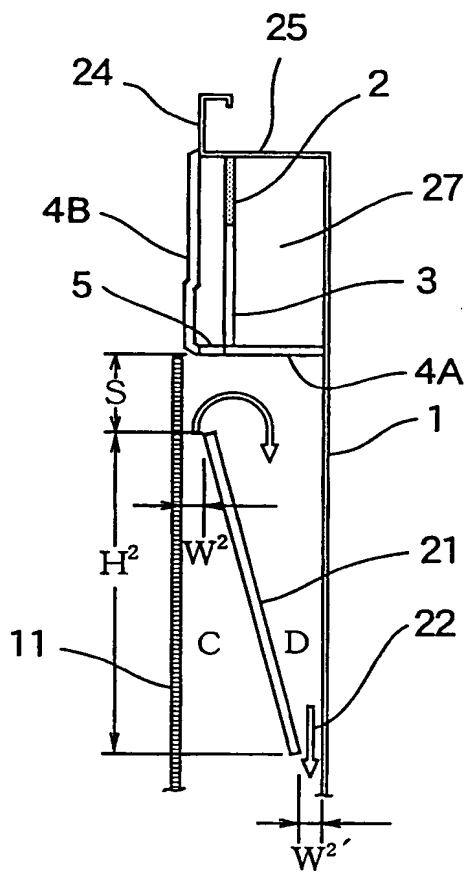
FIG.5 (比較例)



4/10

FIG.6



5/10
FIG.7

6/10
FIG.8

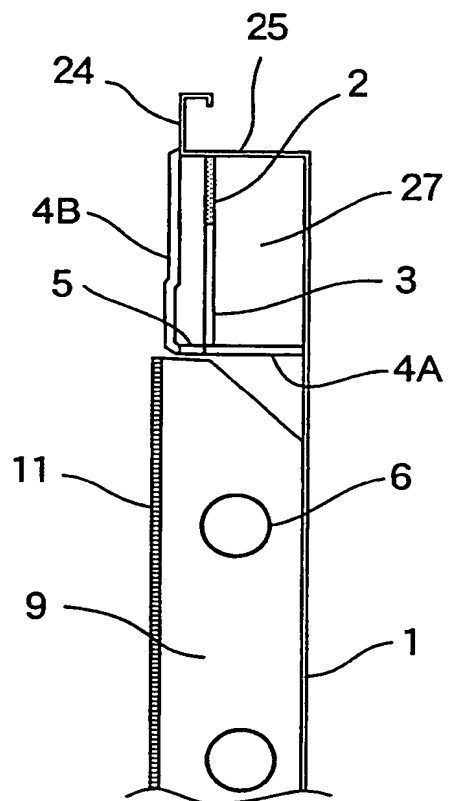
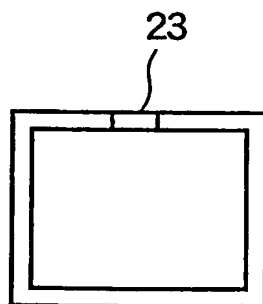


FIG.9



7/10
FIG.10

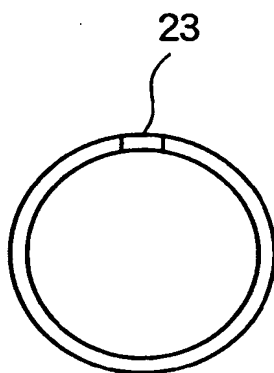
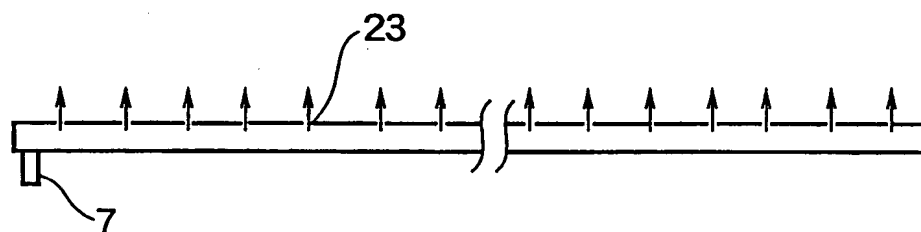
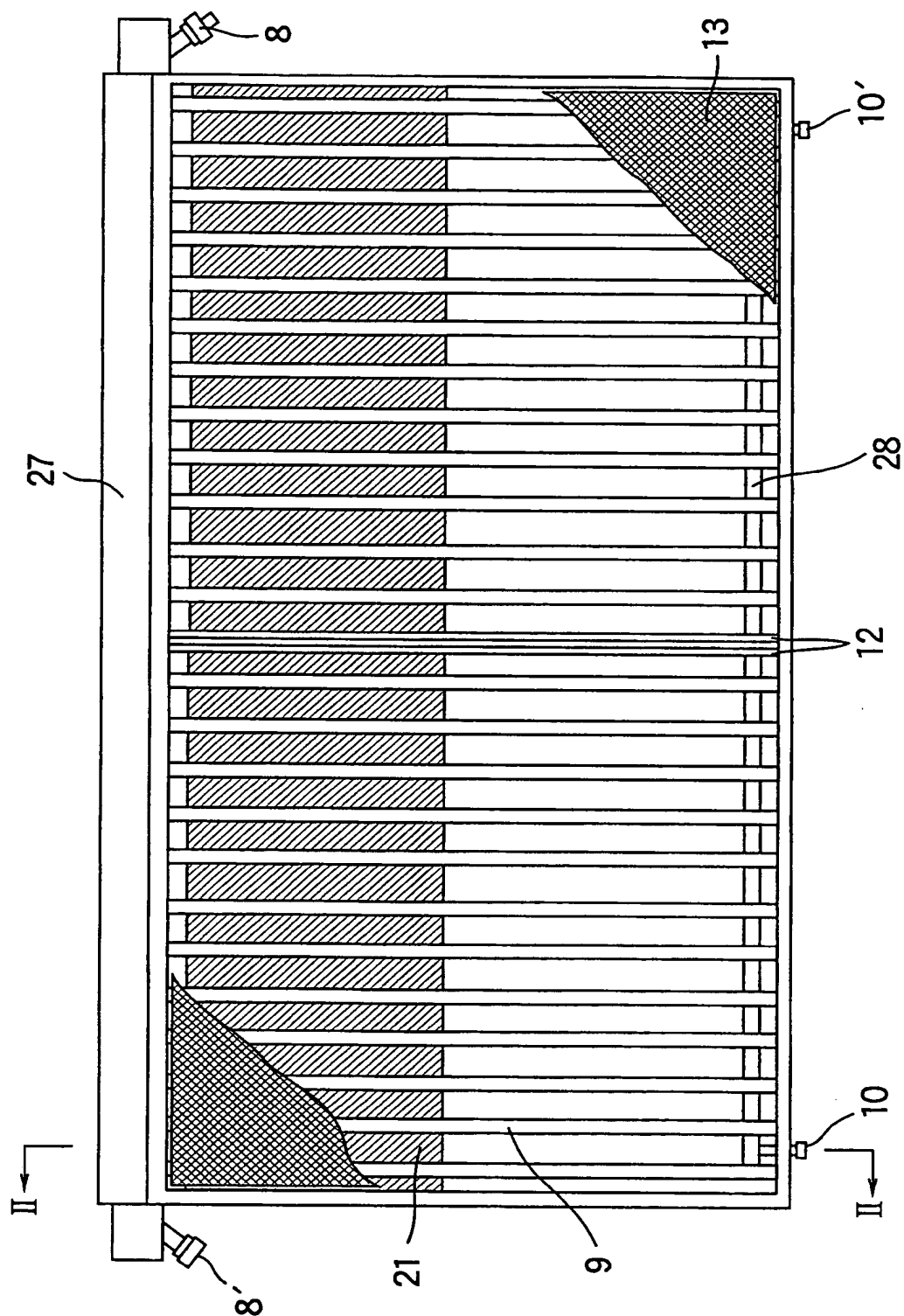


FIG.11



8/10

FIG.12



9/10

FIG.13

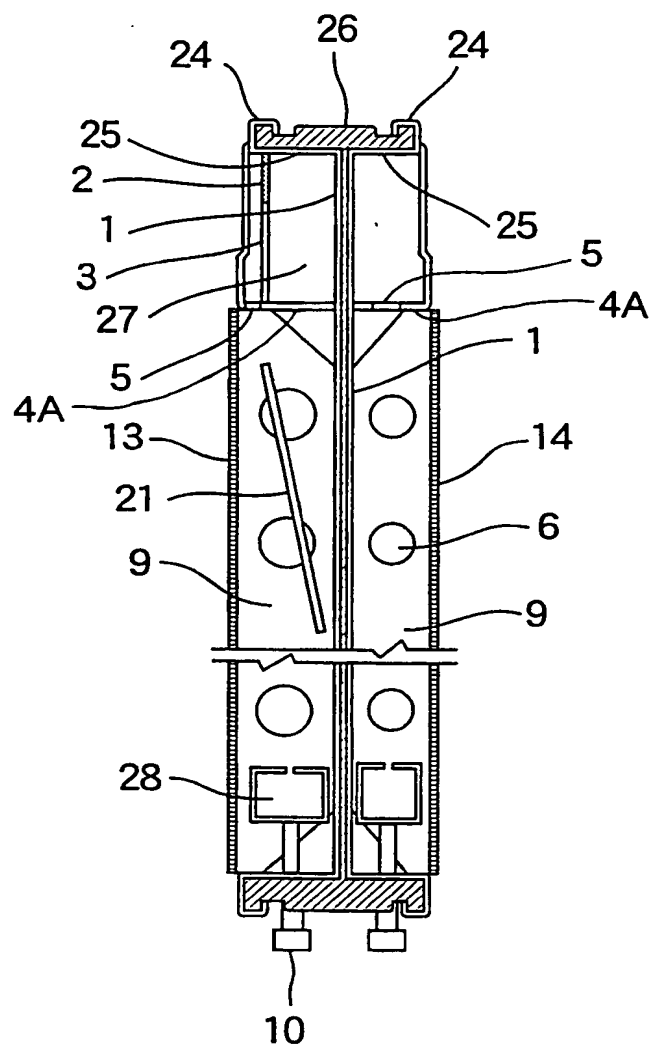
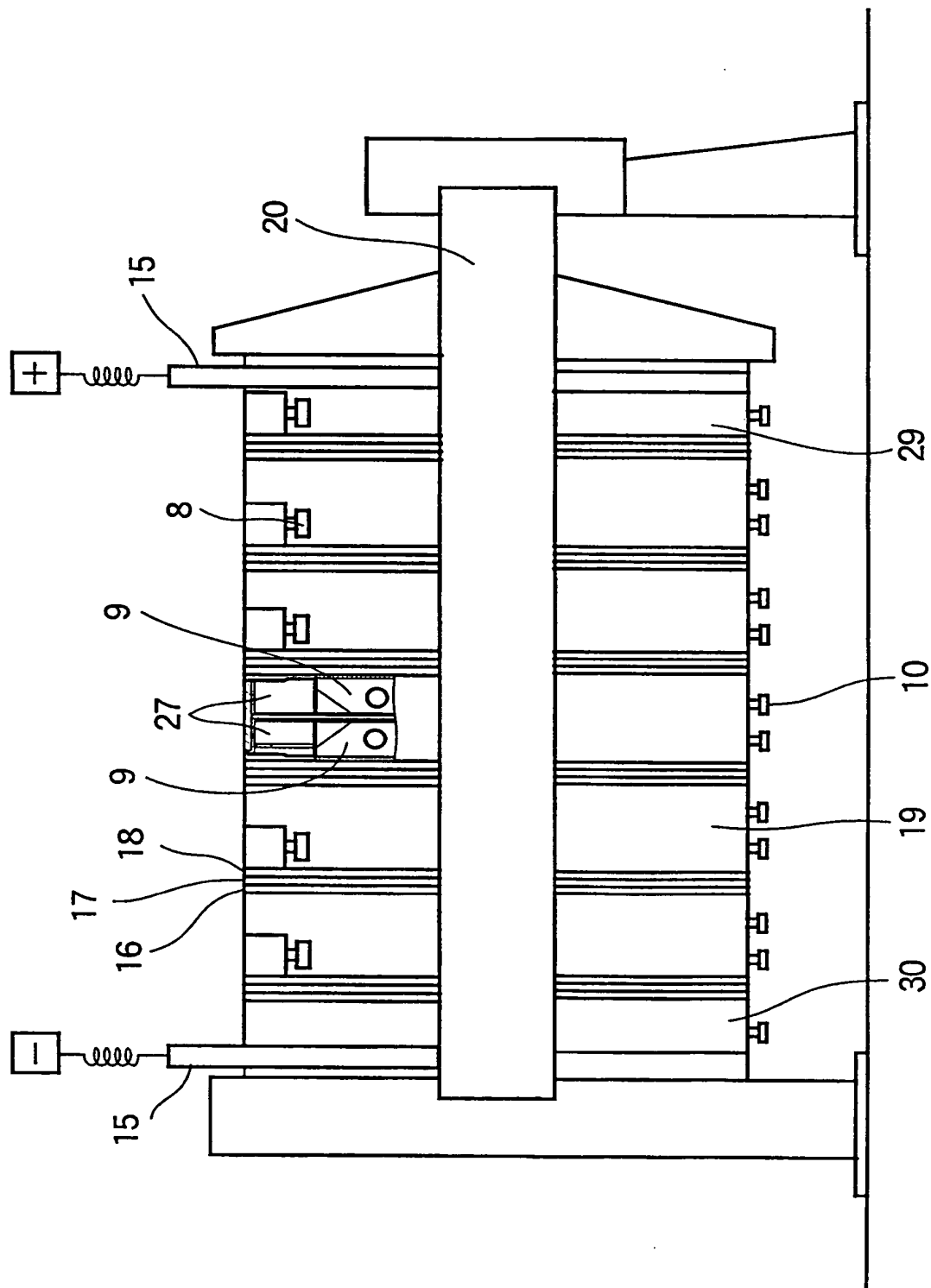


FIG.14



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No.

PCT/JP00/05791

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl.⁷ C25B9/00, 15/08, 302, 1/34

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl.⁷ C25BI/00-15/08

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1926-1999	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2000
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2000	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2000

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP, 11-71693, A (Chlorine Eng. corp. Ltd.), 16 March, 1999 (16.03.99) (Family: none)	1-4
A	JP, 10-110287, A (Choichi FURUYA), 28 April, 1998 (28.04.98) (Family: none)	1-4
A	JP, 5-320970, A (Chlorine Eng. corp. Ltd.), 07 December, 1993 (07.12.93) (Family: none)	1-4
A	JP, 4-350190, A (Asahi Chemical Industry Co., Ltd.), 04 December, 1992 (04.12.92) (Family: none)	1-4
A	JP, 4-289185, A (Asahi Chemical Industry Co., Ltd.), 14 October, 1992 (14.10.92) (Family: none)	1-4

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:
 "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
 "E" earlier document but published on or after the international filing date
 "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
 "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
 "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
 "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
 "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
 "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
08 November, 2000 (08.11.00)

Date of mailing of the international search report
21 November, 2000 (21.11.00)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

国際調査報告

国際出願番号 PCT/JPO0/05791

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ C25B9/00、15/08, 302、1/34

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ C25B1/00-15/08

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本実用新案公報 1926-1999年
 日本国公開実用新案公報 1971-2000年
 日本国登録実用新案公報 1994-2000年
 日本国実用新案登録公報 1996-2000年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	J P、11-71693、A (クロリンエンジニアズ株式会社) 16. 3月. 1999 (16. 03. 99) (ファミリーなし)	1-4
A	J P、10-110287、A (古屋 長一) 28. 4月. 1998 (28. 04. 98) (ファミリーなし)	1-4
A	J P、5-320970、A (クロリンエンジニアズ株式会社) 7. 12月. 1993 (07. 12. 93) (ファミリーなし)	1-4
A	J P、4-350190、A (旭化成工業株式会社)	1-4

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
 「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
 「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
 「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

08. 11. 00

国際調査報告の発送日

21.11.00

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)
 郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

廣野 知子

4E

9266

電話番号 03-3581-1101 内線 3425

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	4. 12月. 1992 (04. 12. 92) (ファミリーなし) JP、4-289185、A (旭化成工業株式会社) 14. 10月. 1992 (14. 10. 92) (ファミリーなし)	1-4